PCT

世界知的所有権機関国際事務局

特許協力条約に基づいて公開された国際出願



(51) 国際特許分類7 COSI 23/10 23/16 COS

C08L 23/10, 23/16, C08K 3/34 // (C08L 23/10, 23:08)

(11) 国際公開番号

WO00/53673

(43) 国際公開日

2000年9月14日(14.09.00)

(21) 国際出願番号

PCT/JP00/01386

A1

(22) 国際出願日

2000年3月8日(08.03.00)

(30) 優先権データ

特願平11/63398

1999年3月10日(10.03.99)]

(71) 出願人(米国を除くすべての指定国について)

出光石油化学株式会社

(IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.)[JP/JP]

〒108-0014 東京都港区芝五丁目6番1号 Tokyo, (JP)

本田技研工業株式会社

(HONDA GIKEN KOGYO KABUSHIKI KAISHA)[JP/JP]

〒107-0062 東京都港区南青山二丁目1番1号 Tokyo, (JP)

(72) 発明者;および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ)

友松龍蔵(TOMOMATSU Ryuzo)[JP/JP]

松尾陽一(MATSUO, Youichi)[JP/JP]

鳴川尚樹(NARUKAWA, Naoki)[JP/JP]

〒299-0107 千葉県市原市姉崎海岸1番地1 Chiba, (JP)

山田哲史(YAMADA, Tetsushi)[JP/JP] 小田哲也(ODA, Tetsuya)[JP/JP]

〒351-0113 埼玉県和光市中央一丁目4番1号

株式会社 本田技術研究所内 Saitama, (JP)

(74) 代理人

弁理士 大谷 保(OHTANI, Tamotsu)

〒105-0001 東京都港区虎ノ門3丁目8番27号

巴町アネックス2号館4階 Tokyo, (JP)

(81) 指定国 BR, CN, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)

添付公開書類

国際調査報告書

(54)Title: PROPYLENE RESIN COMPOSITION AND INTERIOR AUTOMOTIVE MEMBER COMPRISING THE SAME

(54)発明の名称 プロピレン系樹脂組成物及びそれを用いた自動車用内装部材

(57) Abstract

A propylene resin composition comprising: (A) 60 to 90 wt. % propylene resin which (1) comprises 78 to 88 wt. % 23 °C p-xylene-insoluble component (a) and 12 to 22 wt. % 23 °C p-xylene-soluble component (b) and in which (2) the component (a) has an isotactic pentad content of 95 % or higher, a relaxation time τ as determined under specific conditions of 0.01 to 0.35 seconds, and a molecular weight distribution index (PDI) as determined under specific conditions of 1 to 18 and (3) the component (b) has an intrinsic viscosity [η] of 3.3 dl/g or higher and an ethylene unit content of 43 wt. % or lower; (B) 0 to 10 wt. % rubbery elastomer; and (C) 10 to 30 wt. % tale. The resin composition is injection-molded to give an interior automotive member.

(A) (1) (イ) 23℃パラキシレン不溶分78~88重量%と、(ロ) 23℃パラキシレン可溶分12~22重量%とからなり、かつ(2) (イ) 成分が、アイソタクチックペンタッド分率95%以上、特定条件での緩和時間 τ が 0 . 01~0 . 35秒、特定条件での分子量分布指数 (PDI) が1~18であり、さらに (3) (ロ) 成分の極限粘度 [η] が 3 . 3 d 1 / g以上、エチレン単位含有量が 4 3重量%以下である、プロピレン系樹脂60~90重量%と、(B) ゴム状弾性体0~10重量%と、(C) タルク10~30重量%とを含有するプロピレン系樹脂組成物、並びに、この樹脂組成物を射出成形してなる自動車用内装部材を提供する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

ケニア キルギスタン

明細書

プロピレン系樹脂組成物及びそれを用いた自動車用内装部材

技術分野

本発明はプロピレン系樹脂組成物及びこれを用いた自動車用インストルメントバネル等の自動車用内装部材に関し、さらに詳しくは、ウエルド外観、低光沢性等の外観性能が良好であり、かつ耐衝撃性、剛性等の機械的性能に優れ、なおかつこれらのバランスが良好なプロピレン系樹脂組成物、及びこれを用いた自動車用内装部材に関するものである。

背景技術

近年、インストルメントパネル等の自動車用内装部材においては、製品のコストダウンを目的とした無塗装化の進展に伴い、ウエルド外観等における良好な外観性能を有するとともに、光の反射を抑制しかつ落ち着き感を付与するなどの効果がある低光沢性に優れる内装部品の要求が急速に高まっている。また同時に安全対策、材料の低コスト化への要求レベルも厳しくなり、さらにはインストルメントパネルに用いられる材料の統合化が進んでいることに対応し、全インストルメントパネルの仕様を包含しうる耐衝撃性、剛性バランスに優れた材料が求められている。

従来、自動車用内装部品の材料としては、安価な汎用樹脂である プロピレン系樹脂が多用されており、プロピレン系樹脂の耐衝撃性 (常温アイゾット衝撃強度)を向上させるために、スチレン系エス トラマーを配合することが効果的であることが知られている。しか しながら、スチレン系エストラマーは高価である上、得られた成形



材料の光沢度が高いなどの問題がある。

また、耐低温衝撃性に優れた成形材料として、例えば結晶性プロピレンーエチレンブロック共重合体に、メタロセン系触媒を用いて得られたエチレンーαーオレフィン共重合体を配合した樹脂組成物(特開平7 -145272号公報、特開平 7 -145298号公報)、プロピレン系樹脂に、ブテンー1単位含有量の比較的多いエチレンーブテンー1共重合体(実質上メタロセン系触媒により得られたもの)を配合した樹脂組成物(特開平6 -192506号公報、特開平7 -18151号公報)、プロピレン系樹脂に、オクテンー1含有量の比較的多いエチレンーオクテンー1共重合体(実質上メタロセン系触媒により得られたもの)を配合した樹脂組成物(国際公開94-6859号)などが開示されている。しかしながら、これらの樹脂組成物では、耐低温衝撃性は良好であるものの、低光沢性に優れた成型品を製造するのが困難であるという問題があった。

このように、自動車用内装部品の材料となるプロピレン系樹脂組成物においては、その耐衝撃性、剛性等の機械的強度と、外観性能とは相反する性能であり、これらの性能のバランスは近年向上してきているものの充分なレベルには到達していなかった。

発明の開示

本発明は上記のような状況下でなされたものである。すなわち、 本発明は、耐衝撃性、剛性等の機械的性能に優れ、かつウエルド外 観、低光沢性等の外観性能も良好であり、なおかつ、外観性能と機 械的性能のバランスを著しく向上しうるプロピレン系樹脂組成物を 提供することを目的とし、また該組成物を射出成形してなる自動車 用インストルメントパネル等の自動車用内装部材を提供することを 目的とするものである。 本発明者らは鋭意研究を重ねた結果、特定の性状を有するプロピレン系樹脂に、タルクと必要に応じゴム状弾性体を所定の割合で配合した樹脂組成物により、前記本発明の目的を達成することを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち、前記の目的を達成するためになされた本発明のプロピレン系樹脂組成物は、(A)(1)(イ)23℃パラキシレン不溶分80~88重量%と、(ロ)23℃パラキシレン可溶分12~22重量%とからなり、かつ(2)(イ)成分が、アイソタクチックペンタッド分率95%以上、溶液粘弾性測定から得られる角周波数ω10°/secでの緩和時間でが0.01~0.35秒、溶液粘弾性測定から得られる貯蔵弾性率(G')が2×10²Paとなるような角周波数をω1、2×10²Paとなるような角周波数をω2としたときのω2/10ω1で表される分子量分布指数(PDI)が1~18であり、さらに(3)(ロ)成分の極限粘度〔η〕(135℃、デカリン中)が3.3dl/g以上、エチレン単位含有量が43重量%以下である、プロピレン系樹脂60~90重量%と、(B)ゴム状弾性体0~10重量%と、(C)タルク10~30重量%とからなる。

さらに、本発明の自動車用内装部材は、上記プロピレン系樹脂組成物を射出成形してなるものである。

発明を実施するための最良の形態

本発明の樹脂組成物において、(A)成分として用いられるプロピレン系樹脂は、以下に示す性状を有する。まず、23℃パラキシレンにより分別した場合、(イ)不溶分量が78~88重量%で、(ロ)可溶分量が12~22重量%である。不溶分量が78重量%未満では成形品の耐衝撃性と剛性のバランスが不十分であり、88

重量%を越えると成型品のウエルド外観および低光沢性が不充分となる。なお、23℃パラキシレンによる分別は、試料を130℃のパラキシレンに完全溶解後、23℃に冷却することにより溶解部分と非溶解部分に分別することにより行うことができる。

上記(イ)成分は、そのアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であることが必要である。アイソタクチックペンタッド分率は、「3C-NMRスペクトルにおいてメチル炭素領域のシグナルから求められる。本発明においてはアイソタクチックペンタッド分率が95%未満の場合、耐衝撃性と剛性のバランスが不充分なだけでなく、耐傷付性も不充分となる。これらの点に鑑みて、上記アイソタクチックペンタッド分率は、95%以上であることが好ましい。

また、上記(イ)成分は、溶液粘弾性測定から得られる角周波数 ω が 1 0 $^{\circ}$ $^{\circ}$

さらに、上記(イ)成分においては、溶融粘弾性測定から得られる 貯蔵弾性率(G')が 2×10^2 Paとなるような角周波数を ω 」

、 2×10^4 Paとなるような角周波数を ω 。としたとき、 ω 2 \angle 1 0ω 1 で表される分子量分布指数(PDI)が $1 \sim 18$ 、好ましくは $5 \sim 15$ である。PDIが1 未満では成型品の耐衝撃性と剛性のバランスが不充分であり、18 を越えると成型品のウエルド外観および低光沢性が不充分となる。これらの点に鑑みて、上記PDIは $1 \sim 18$ であることが好ましい。なお、上記PDIは、測定機器としてレオメトリックス社製システム4 [回転型レオメーター、コーンプレート($25 \text{ mm} \phi$)、コーンアングル:0.1957 であい、温度 175%、歪 30%で測定を行い求めた値である。

本発明においては、上記(イ)成分の諸特性に加え、(ロ)成分のエチレン単位含有量が43重量%以下であることが必要である。エチレン単位含有量が43重量%を越えると耐衝撃性と剛性のバランスが不充分なだけでなく、耐傷付性も不充分となる。これらの点及びウエルド外観、低光沢性等外観性能と耐衝撃性、剛性等機械的性能のバランスから、上記エチレン単位含有量は40重量%以下、好ましくは20~40重量%以下、さらに33~39重量%であることが好ましい。

また、(ロ)成分の極限粘度〔 η 〕(135 $^{\circ}$ C、デカリン中)は3.3 d 1/g以上、好ましくは3.5 \sim 4.0 d 1/gの範囲内である。極限粘度〔 η 〕が3.3 d 1/g未満では、成型品のウエルド外観および低光沢性が不充分となる。この点に鑑みて、極限粘度〔 η 〕は3.3 d 1/g以上であることが好ましい。また、4.0 d 1/gを超えると、溶融混練する際、凝集体が発生しやすくなる恐れがある。

上記(A)成分のプロピレン系樹脂は、温度 2 3 0 ° 、荷重 2.16 kgf (21.2 N) の条件で測定したメルトインデックス(MI)が

1~100g/10分の範囲にあることが好ましい。このMIが1g/10分未満では流動性が低くて成形性が悪く、100g/10分を越えると成型品の耐衝撃性、剛性等の機械的性能が低下する。成形性および機械的性能のバランスの面から、上記MIは5~70g/10分、特に8~40g/10分の範囲であることが好ましい。なお、このMIはJIS K7210に準拠して求めた値である

上記(A)成分のプロピレン系樹脂の製造方法については、前記要件を満たすプロピレン系樹脂を得ることができる方法であればいかなる方法にも使用でき、特に制限されず、様々な方法が挙げられる。例えば、別々に重合して得られた各成分をブレンドする方法、あるいは次に示すように、

(a) (i) マグネシウム、チタン、ハロゲン原子及び電子供与体からなる固体触媒成分、及び必要に応じて用いられる(ii) 結晶性ポリオレフィンから構成される固体成分と、(b) 有機アルミニウム化合物と、通常用いられる(c) 電子供与性化合物とからなる触媒系の存在下、多段重合を行い、プロピレンーエチレンブロック共重合体を製造する方法などがある。

上記多段重合における触媒系において、(a)固形成分は、(i)成分のマグネシウム、チタン、ハロゲン原子及び電子供与体からなる固体触媒成分と、必要に応じて用いられる(ii)結晶性ポリオレフィンから構成されている。該(i)固体触媒成分は、マグネシウム化合物とチタン化合物と電子供与体とを接触させることによって調製することができる。なおこの場合、ハロゲン原子は、ハロゲン化物としてマグネシウム化合物及び/又はチタン化合物などに含まれる。

マグネシウム化合物として、金属マグネシウムとハロゲン及び/ 又はハロゲン含有化合物とアルコールとの反応生成物を用いること もできる。また、チタン化合物としては、公知のチタン化合物を用 いることができるが、高ハロゲン含有チタン化合物、特に四塩化チ タンが好適である。チタン化合物は一種だけで用いても良く、二種 以上を組み合わせて用いてもよい。

電子供与体としては、後で(c)成分の電子供与性化合物として例示するものを用いることができる。該(i)固形触媒成分の調製は、公知の方法(特開昭53-43094 号公報、特開昭55-135102号公報、特開昭55-135103号公報、特開昭56-18606 号公報、特開昭56-166205号公報、特開昭57-63309 号公報、特開昭57-190004号公報、特開昭57-300407号公報、特開昭58-47003 号公報)を用いて行うことができる。

また、(a)固形成分の調製において必要に応じて用いられる(ii)成分の結晶性ポリオレフィンとしては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、ポリ4ーメチルー1ーペンテンなどの炭素数 2~10のαーオレフィンから得られる結晶性ボリオレフィンが挙げられる。この結晶性ポリオレフィンは、前記(i)固形触媒成分と有機アルミニウム化合物と必要に応じて用いられる電子供与性化合物とを組み合わせたものの存在下に、プロピレンを予備重合させる方法(予備重合法)等、公知の方法により得ることができる。

次に、(b)成分として用いられる有機アルミニウム化合物としては、一般式(I)

 $A I R^{I}_{P} X_{3-P} \cdots (I)$

[式中、R'は炭素数3~20のアルキル基又は炭素数6~20の

アリール基、Xはハロゲン原子、Pは1~3の数を示す。〕で表される化合物を挙げることができる。

さらに、該触媒には、通常(c)成分として電子供与性化合物が 用いられる。この電子供与性化合物は、酸素、窒素、リン、イオウ 、ケイ素などを含有する化合物であり、基本的にはプロピレンの重 合において、規則性の向上性能を有するものが考えられる。このよ うな電子供与性化合物としては、例えば、有機ケイ素化合物、エス テル類、ケトン類、エーテル類、チオエーテル類、酸無水物、酸ハ ライド類が好ましく用いられる。

以上、チーグラー系の固体触媒を用いる場合について、詳しく述べたが、触媒としては近年注目されているメタロセン系の触媒を用いることもできる。本発明において、(A)成分として用いるプロピレン系樹脂は、各種の方法で得ることができるが、例えば前記した触媒系の存在下、多段重合によって製造することができる。多段重合における重合順序、及び重合段数は必要に応じ任意に選択することができる。例えば、最初の重合(第一段重合)は結晶性プロピレン系重合体が得られるようにプロピレンの単独重合又は共重合(2重量%以下のエチレンや他のオレフィンを含有する)を行い、第二段以降でエチレンとプロピレンとのランダム共重合を行うことができる。

重合に際しては、触媒系を構成する各成分、すなわち(a)~(c)成分を所定の割合で混合し、接触させたのち、ただちにモノマーを導入し、重合を開始してもよいし、接触後0.2~3時間程度熟成させたのちモノマーを導入してもよい。重合後の後処理は常法により行うことができる。本発明の樹脂組成物においては、この(

A) 成分のブロビレン系樹脂は一種用いても良く、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

本発明のプロピレン系樹脂組成物には、(B)成分としてゴム状弾性体が用いられる。このゴム状弾性体としては、ポリブタジエン 、スチレンーブタジエン共重合体、アクリルニトリルーブタジエン 共重合体、ボリイソプレン等共役ジエン系化合物の重合体、エチレン・プロピレンランダム共重合体(エチレン・プロピレンラバー)、エチレンー αオレフィン(炭素数 4 ~ 1 0)ランダム共重合体(ゴチレン・プロピレンラバー)、エチレン・プロピレンラバー)、エチレンと1 ーオクテンをうンダム共重合して得られる二元共重合ゴムを好適に用いることができる。

更に、本発明の樹脂組成物においては、(B)成分として、メタロセン系触媒で重合したエチレンー炭素数 3~1 8のαーオレフィン共重合体が用いられる。このエチレンーαーオレフィン共重合体の密度は、0.850~0.875g/cm³の範囲である。この密度が0.850g/cm³未満では成形品の剛性が不充分となり、0.875g/cm³を超えると耐衝撃性の改良効果が充分に発揮されない。剛性及び耐衝撃性などの面から、特に好ましい密度は、0.855~0.870g/cm³の範囲である。また、メルトインデックス(MI)は0.01~25g/10分の範囲である。このMIが0.01g/10分未満では耐衝撃性の改良効果が充分に発揮されず、またフローマークが発生するおそれがあり、25g/10分を超えるとシボ面での低光沢性及び耐衝撃性が不充分となるおそれがある。耐衝撃性、低光沢性及び成形性などの面から、好ましMIは0.01~6g/10分の範囲であり、特に0.01~1g/10分の範囲が

好適である。なお、このM I は、温度 1 9 0 ℃ , 荷重 2. 1 6 g k g f (21.2 N) の条件で測定した値である。

この共重合体のコモノマーとして用いられる炭素数 3~1 8 の αーオレフィンとしては、例えばブテンー1;ペンテンー1;ヘキセンー1;オクテンー1;ノネンー1;ドデセンー1;ドデセンー1などの直鎖状αーオレフィン・3ーメチルブテンー1;4ーメチルペンテンー1などの分岐状αーオレフィンが挙げられるが、これらの中で、特に炭素数 4~1 0 の直鎖状αーオレフィンが好ましい。これらのαーオレフィンは単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。また、ジエン成分、例えばジシクロペンタジエン;エチリデンノルボルネン;1、4ーヘキサジエン;1、9ーデカジエン;ビニルノルボルネンなどを併用してもよい。

前記(B)成分のエチレンーαーオレフィン共重合体としては、例えば、ダウ・ケミカル日本(株)から販売されているENGAGE[ザ・ダウ・ケミカル・カンパニー商標]POEsがあり、これらの中から選択して用いることができる。

また(C)成分としてタルクが用いられる。このタルクの大きさとしては、得られる成形品の剛性、耐衝撃性、耐傷付き白化性、ウエルド外観、光沢ムラなどの物性等の点から、平均粒径 l ~ 8 μ m で、平均アスペクト比が 4 以上のものが好適である。特に加工粉砕法により得られたものが、物性、剛性などの点でとりわけ好ましい

本発明のプロピレン系樹脂組成物における各成分の含有割合は、(A)成分のプロピレン系樹脂が60~90重量%、(B)成分のゴム状弾性体が0~10重量%以下、(C)成分のタルクが10~30重量%である。(A)成分の含有量が60重量%未満では成形

品のウエルド外観やシボ面での低光沢性が不充分であり、またフローマークが発生するなど成形性が悪く、90重量%を越えると耐衝撃性が低下する。また、(B)成分の含有量は好ましくは0~7重量%、特に好ましくは0~3重量%以下である。上記範囲を越えると成形品のウエルド外観や低光沢性が不充分である。(C)成分の含有量が10重量%未満では、インストルメントパネル等の成形品の寸法精度および剛性が不足し、30重量%を越えると成形性および成形品のウエルド外観が不充分である。

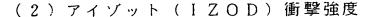
本発明のプロピレン系樹脂組成物においては、必要に応じ、顔料、核剤、耐候剤、酸化防止剤、耐電防止剤、難燃剤、分散剤など公知の添加剤を配合することができる。本発明のプロピレン系樹脂組成物の調製方法については特に制限はなく、例えば前記(A)成分、(C)成分及び必要に応じて用いられる(B)成分や他の添加成分を、一軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、ニーダ、ロールなどを用いて溶融混練する方法等を採用できる。

本発明の自動車用内装部材は、このようにして得られたプロピレン系樹脂組成物を、射出圧縮成形法、ガス注入射出成形法などの公知の射出成形法を用いて成形することにより得ることができる。本発明において自動車用内装部材としては、例えばインストルメントパネル、ドアトリム、コンソールボックスなどがある。

次に、本発明を実施例によりさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの例によって何ら限定されるものではない。なお成形品の物性は以下に示す方法により求めた。

(l) メルトインデックス (MI)

プロピレン系樹脂組成物、プロピレン系重合体について、JIS K7210に準拠して求めた。



テストピース成形品について、JIS K7110に準拠して求めた。

(3)曲げ弾性率

テストピース成形品について、JIS K7203に準拠して求めた。

(4) ウエルド外観

テストピース成形品について、裏面の平面を目視評価した。ウエルド部が殆ど識別できない場合を◎、ウエルド部が若干識別できるが、実用上問題ないレベルを○、ウエルド部が若干目立ち、実用上問題あるレベルを△、ウエルド部が目立つ場合を×とした。

(5)低光沢性

テストピース成形品について、JIS K7105に準拠して求めた。

(6) アイソタクチックペンタッド分率

試料220gを10 ϕ のNMR試料管に投入し、1,2,4-トリクロロベンゼン/重ベンゼン(90/10容量%)3ミリリットルを加えて、140 $^{\circ}$ で均一に溶解させた後、次の条件で「 $^{\circ}$ C-NMRを測定した。周波数:45MHz、スペクトル幅:25000Hz、測定温度:130 $^{\circ}$ 、パルス幅:8 μ 秒、パルス繰り返し時間:4秒、積算回数:10000回。

また、プロピレン系樹脂の性状は、明細書本文に記載した方法に従って測定した。

- 1. プロピレンブロック共重合体(PP-1)の製造
- (1)マグネシウム化合物の調製

内容積500リットルの攪拌翼付き付きのガラス製反応器を窒素

ガスで充分に置換した後、エタノール 9 7. 2 kg、ヨウ素 6 4 0 g 及び金属マグネシウム 6. 4 kgを投入し、攪拌しながら環流条件下 で反応させ、固体状反応生成物を得た。この固体状反応生成物を含 む反応液を減圧下で乾燥させることにより、マグネシウム化合物(固体生成物)を得た。

(2) 固体触媒成分の調製

窒素ガスで充分に置換した内容積 5 0 0 リットルのガラス製三つ口フラスコに、上記(1)で得られたマグネシウム化合物(粉砕していないもの)30kg、精製ヘプタン150リットル、四塩化珪素4.5リットル及びフタル酸ジーnーブチル4.3リットル加えた。系内を90℃に保ち、攪拌しながら四塩化チタン144リットルを投入して、110℃で2時間反応させたのち、固体成分を分離して80℃の精製ヘプタンで洗浄した。さらに、四塩化チタン228リットルを加え、110℃で2時間反応させたのち、精製ヘプタンで充分に洗浄し、固体触媒成分を得た。

(3)重合前処理

内容積500リットルの攪拌翼付き反応槽に、精製nーヘプタン230リットルを投入し、さらに、前記(2)で得られた固体触媒成分25kgを加え、次いで、この固体触媒成分中のTilモルに対し、トリエチルアルミニウムを0.6モル及びジシクロペンチルジメトキシシランを0.4モルの割合で加えた後、プロピレンをプロピレン分圧で0.3kg/cm²Gになるまで導入し、20℃で4時間反応させた。反応終了後、固体触媒成分をnーヘプタンで数回洗浄し、二酸化炭素を供給し24時間攪拌した。

(4) 重合によるプロピレンブロック共重合体(PP-1)の製造まず、前段として内容積200リットルの攪拌翼付き重合槽(第

一重合槽)に、上記(3)の処理済の固体触媒成分をTi原子に換算して0.6ミリモル/hrで、トリエチルアルミニウムを4.0ミリモル/kg-PPで、ジシクロペンチルジメトキシシランを0.4ミリモル/kg-PPでそれぞれ供給し、重合温度85℃、重合圧力(全圧)28kg/cm²Gでプロピレンを反応させた。この時、所望のエチレン含有量及び分子量になるようにエチレン供給量及び水素供給量を調整した。

次に、第一重合槽から連続的にパウダーを抜き出し、内容積200リットルの攪拌翼付き重合槽(第二重合槽)に移送した。第二重合槽では、重合温度70℃、重合圧力(全圧)15kg/cm²Gにて運転し、所望の組成及び分子量になるようにプロピレン、エチレン及び水素供給量比を調製した。連続的に抜き出したパウダーを造粒し、プロピレンブロック共重合体(PP-1)を得た。

プロピレンブロック共重合体(PP-2)~(PP-6)の製造

上記1.のPP-1において、下記第1表に示す配合とする以外は、上記1.のPP-1の製造方法に準じてプロピレンブロック共重合体(PP-2)~(PP-6)を得た。

実施例1~4及び比較例1~5

第1表-1及び2に示す性状と量((A)~(C)成分は、(A)~(C)成分の合計量を100重量%としたときの各成分の重量%を示し、(イ)及び(ロ)成分は、(イ)及び(ロ)成分の合計量を100重量%としたときの各成分の重量%を示す。)の(A)プロピレン系樹脂、(B)ゴム状弾性体、(C)タルクの合計量100重量部に対し、ダークグレー顔料(大日精化社製、商品名:PP-DHH7343)1.0重量部を配合し、二軸混練機で混練し

て成形材料を調製したのち、射出成形機により樹脂温度 220 で 成形して、テストピース($140 \times 140 \times 3$ m m の内装用シボ付き板)を作成し、物性及び外観性能を評価した。結果を第1表-2に示す。

第1表一1

77 1 4X 1											
		プロピレン系樹脂									
				(4)23 ℃パラキシレン不溶分				(11)	ΜI		
		種類	重量%	重量%	7イソタクチック ベンタッド 分 率 (%)	秒	PDI	重量%	エチレン 含有量 (重量%)	極限粘度 〔η〕 (dl/g)	g/10 分
	1	PP-1	75	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8	9
実	2	PP-1	73	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8	9
施	3	PP-1	69	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8	9
例	4	PP-1	83	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8	9
	1	PP-2	73	83	97.6	0.14	10	17	48	3.8	9
比	2	PP-3	73	84	97.7	0.11	10	16	37	2.8	1 4
較	3	PP-4	73	83	97.5	0.14	10	17	47	2. 9	1 3
例	4	PP-5	73	83	97.7	0.14	10	17	56	2. 1	1 1
	5	PP-6	73	90	97.3	0.11	10	10	42	2. 9	1 2

		(B) ゴム状 弾性体		(C) タルク	テストピース物性			テストピース 外観性能		
		種類	重量%	重量%	M I (g/10 分)	IZOD 衝撃強度 (kJ/m²)	曲げ弾 性率 (MPa)	ウエル ド外観	低光沢性 (%)	
rie:	l	190ty LL	2	23	13	32	2980	0	2. 1	
実	2	メタロセン LL	4	23	11	58	2660	0~0	2. 1	
施	3	19017 LL	8	23	8	NB	2460	0	2. 2	
例	4	メタロセン LL	2	15	12	46	2300	0	2. 1	
	1	メタロセン LL	4	23	10	28	2740	0	2. 1	
比	2	メタロセン LL	4	23	14	33	2650	Δ	2. 4	
較	3	メタロセン LL	4	23	14	26	2730	Δ~0	2. 2	
例	4	ygoty LL	4	23	12	NB	2530	×	2.9	
	5	メタロセン LL	4	23	13	22	2950	×	2.5	

第 1 表 - 2

(注)

メタロセンLL: (EG-8100、ザ・ダウ・ケミカル・カンパニー)

タルク:浅田製粉社製、商品名: JM209、平均粒径(4.2) μ m (レーザー式粒度分析計で測定[島津製作所SALD2000A])

産業上の利用可能性

本発明のプロピレン系樹脂組成物は、ウエルド外観、低光沢性等の外観性能が良好で、耐衝撃性、剛性の機械的性能に優れており、外観性能と機械的性能という相反する性能をお互いに損なうことな

くバランスよく向上している。また、この樹脂組成物は、無塗装化 が可能でコストダウンを図ることができ、自動車用内装部材の成形 材料として最適である。

本発明の樹脂組成物から得られた自動車用内装部材は、ウエルド外観、低光沢性等の外観性能が良好で、無塗装化が可能でコストダウンを図ることができ、耐衝撃性、剛性の機械的性能に優れており、外観性能と機械的性能という相反する性能をお互いに損なうことなくバランスよく向上している。このため、例えばインストルメントパネル等の自動車用内装部材として最適である。

請求の範囲

1. (A) (1) (イ) 23 \mathbb{C} パラキシレン不溶分 78 \sim 88 重量%と、(ロ) 23 \mathbb{C} パラキシレン可溶分 12 \sim 22 重量%とからなり、かつ(2) (イ)成分が、アイソタクチックペンタッド分率95%以上、溶液粘弾性測定から得られる角周波数 ω 10 $^{\circ}$ / secでの緩和時間 τ が 0. 01 \sim 0. 35秒、溶液粘弾性測定から得られる貯蔵弾性率(\mathbb{C} ')が 2 \times 10 $^{\circ}$ Paとなるような角周波数を ω 2 \times 10 \times Paとなるような角周波数を ω 2 \times 2 \times 10 \times 10

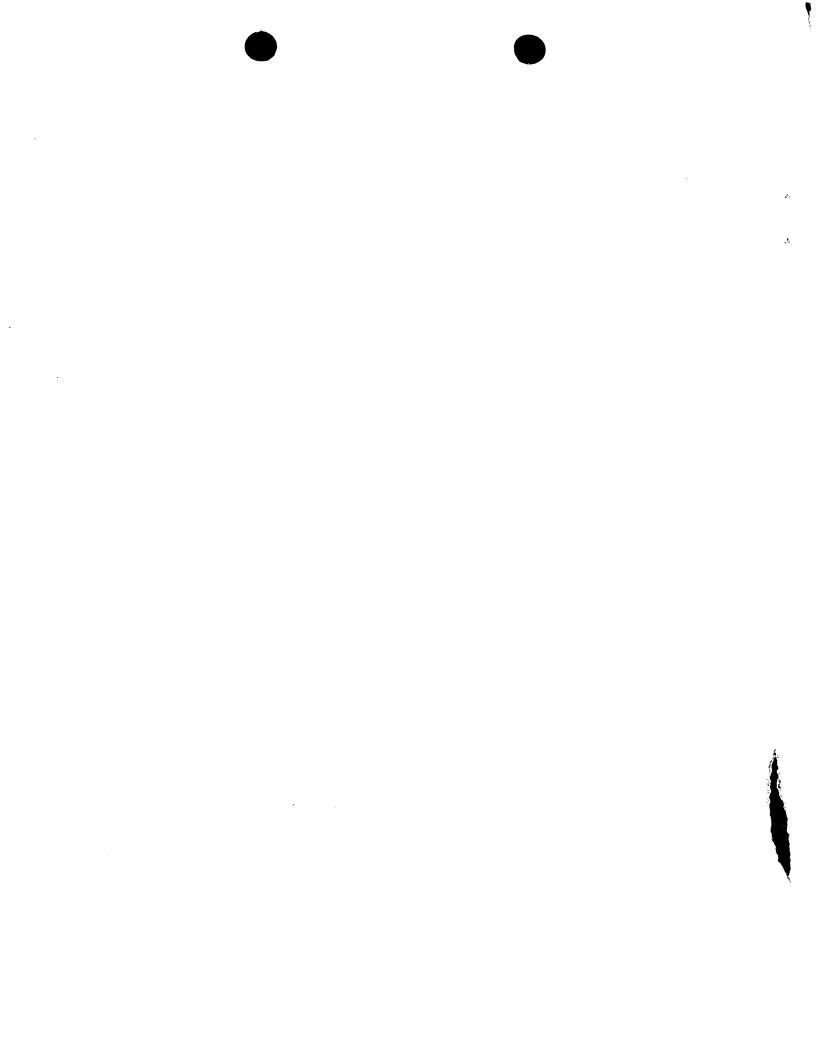
- 2. (ロ)成分のエチレン単位含有量が33~39重量%である請求項1記載のプロピレン系樹脂組成物。
- 3. 請求項1又は2に記載のプロピレン系樹脂組成物を射出成形してなる自動車用内装部材。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/01386

Int.	Int.Cl ⁷ , CO8L 23/10, CO8L 23/16, CO8K 3/34// (CO8L 23/10, CO8L 23:08)				
	o International Patent Classification (IPC) or to both nat S SEARCHED	tional classification and IPC			
Minimum do	finimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl ⁷ , C08L 23/00-23/36				
Jits Koka	tion searched other than minimum documentation to the suyo Shinan Koho 1926-1996 ii Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000	Jitsuyo Shinan Toroku K Toroku Jitsuyo Shinan K	oho 1996-2000 oho 1994-2000		
Electronic as	ata base consulted during the international search (name	e of data base and, where practicable, sear	rch terms used)		
C. DOCUI	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category*	Citation of document, with indication, where ap		Relevant to claim No.		
Х	JP, 9-71691, A (Idemitsu Petroc 18 March, 1997 (18.03.97), Claims; Par. Nos. 0001, 0030		1-3		
PX	JP, 11-71431, A (Idemitsu Petro 16 March, 1999 (16.03.99), Claims; Par. No. 0001 (Family	1-3			
A	JP, 10-45971, A (TOSOH CORPORAT 17 February, 1998 (17.02.98), C		1-3		
A	A US, 5574087, A (Idemitsu Petrochemical Co.,Ltd), 12 November, 1996 (12.11.96), Claims & JP, 7-314490, A				
A	1-3				
Further	r documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.			
"A" docume consider earlier of date "L" docume cited to special "O" docume means "P" docume than the	determine the general state of the art which is not sered to be of particular relevance document but published on or after the international filing ent which may throw doubts on priority claim(s) or which is establish the publication date of another citation or other reason (as specified) ent referring to an oral disclosure, use, exhibition or other ent published prior to the international filing date but later e priority date claimed actual completion of the international search day, 2000 (08.05.00)	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art document member of the same patent family Date of mailing of the international search report 16.05.00			
	nailing address of the ISA/	Authorized officer			
Facsimile No	į	Telephone No.			



国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/01386

	属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) OBL 23/10, COBL 23/16, COBK 3/34// (COBL 23/	/10, CO8L 23:08)	
1	「つた分野 最小限資料(国際特許分類(IPC)) OBL 23/00-23/36		
日本国実用 日本国公開 日本国実用	外の資料で調査を行った分野に含まれるもの新案公報1926-1996年実用新案公報1971-2000年新案登録公報1996-2000年実用新案公報1994-2000年		
国際調査で使用	用した電子データベース(データベースの名称、	調査に使用した用語)	
C. 関連する	ると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	さは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 9-71691, A(出光7 18.3月.1997(18.03 001,0030段落(ファミリーな	3.97)特許請求の範囲、0	1 – 3
PX	JP, 11-71431, A(出) 16.3月.1999 (16.03 001段落 (ファミリーなし)		1 — 3
図 C欄の続	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	紙を参照。
もの 「E」国際出 以後に 「L」優先権 日若し 文献() 「O」口頭に	のカテゴリー 連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す 願日前の出願または特許であるが、国際出願日 公表されたもの 主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 くは他の特別な理由を確立するために引用する 理由を付す) よる開示、使用、展示等に言及する文献 願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表 て出願と矛盾するものではなく、 論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、 の新規性又は進歩性がないと考 「Y」特に関連のある文献であって、 上の文献との、当業者にとって よって進歩性がないと考えられ 「&」同一パテントファミリー文献	、発明の原理又は理 当該文献のみで発明 えられるもの 当該文献と他の1以 自明である組合せに
国際調査を完	了した日 08.05.00	国際調査報告の発送日 16.	05 .00
日本	の名称及びあて先 国特許庁(ISA/JP) 郵便番号100-8915 都千代田区霞が関三丁目4番3号		4 J 9 6 4 0 内線 3 4 9 3



国際出願番号 PCT/JP00/01386

	国際調査報告	0/01386
C (続き).	関連すると認められる文献	BD. L
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 10-45971, A (東ソー株式会社) 17.2月.1998 (17.02.98) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-3
A	US, 5574087, A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd) 12. 11月. 1996 (12. 11. 96) 特許請求の範囲 & JP, 7-314490, A	1-3
A	WO, 97/49765, A (出光石油化学株式会社) 31.12月.1997 (31.12.97) 特許請求の範囲 &JP, 10-7851, A&EP, 908492, A1&U S, 6034165, A	1-3

A. Int.	発明(Cl',	の属す CO8L	る分野 23/10,	の分類 C08L	(国際 ⁴ 23/16,	侍許分 C08K	類(I I 3/34//	(C08L	23/10,	C08L	23:08

調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. C17, C08L 23/00-23/36

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連する	らと認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示		関連する 請求の範囲の番号
Х	JP, 9-71691, A (出光石油化学株式会社) 18.3月.1997 (18.03.97) 特許請求の範囲、 001,0030段落 (ファミリーなし)	0	1 — 3
PΧ	JP, 11-71431, A (出光石油化学株式会社) 16.3月.1999 (16.03.99) 特許請求の範囲、 001段落 (ファミリーなし)	0	1 — 3

|X| C欄の続きにも文献が列挙されている。

| | パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献 (理由を付す)
- 「O」ロ頭による開示、使用、展示等に言及する文献

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって て出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理 論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 国際調査報告の発送日 国際調査を完了した日 1 6.05.00 08.05.00 9640 特許庁審査官(権限のある職員) 4 J 国際調査機関の名称及びあて先 小出 直也 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 電話番号 03-3581-1101 内線 3493 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

様式PCT/ISA/210 (第2ページ) (1998年7月)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

国際調査報告

C (続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の		関連する
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号 1-3
A	JP,10-45971,A(東ソー株式会社) 17.2月.1998(17.02.98)特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-3
A	US, 5574087, A (Idemitsu Petrochemical Co.,Ltd) 12.11月.1996 (12.11.96) 特許請求の範囲 &JP, 7-314490, A	1 – 3
A	WO, 97/49765, A (出光石油化学株式会社) 31.12月.1997 (31.12.97) 特許請求の範囲 & JP, 10-7851, A&EP, 908492, A1&U S, 6034165, A	1-3
	·.	:
	·	

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Interiminal Search Report

特許協力条約

PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 FI-300	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。					
国際出願番号 PCT/JP00/01386	国際出願日 (日.月.年) 08.03.00 優先日 (日.月.年) 10.03.99					
出願人 (氏名又は名称) 出光石油化学株式会社						
国際調査機関が作成したこの国際調 この写しは国際事務局にも送付され	査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。 る。					
この国際調査報告は、全部で 4	ページである。					
この調査報告に引用された先行	技術文献の写しも添付されている。					
1. 国際調査報告の基礎 a. 言語は、下記に示す場合を除	くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。 された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。					
b. この国際出願は、ヌクレオチ この国際出願に含まれる	ド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。 Famによる配列表					
この国際出願と共に提出さ	されたフレキシブルディスクによる配列表					
	幾関に提出された書面による配列表					
□ 出願後に、この国際調査を □ 出願後に提出した書面に。 書の提出があった。	機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表 よる配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述					
	した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述					
 2. 請求の範囲の一部の調査	ができない(第I欄参照)。					
3.	いる(第Ⅱ欄参照)。					
4. 発明の名称は 🗓 出	I願人が提出したものを承認する。					
	に示すように国際調査機関が作成した。					
	出願人が提出したものを承認する。					
	≶Ⅲ欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により 国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこ ○国際調査機関に意見を提出することができる。					
6. 要約書とともに公表される図に 第 図とする。 □ 日	は、 出願人が示したとおりである。					
П н	出願人は図を示さなかった。					
	×図は発明の特徴を一層よく表している。					

THIS PAGE BLANK (USPTO)

第Ⅲ欄 要約 (第1ページの5の続き)

- (A) (1) (イ) 23℃パラキシレン不溶分78~88重量%と、
- (ロ) 23℃パラキシレン可溶分12~22重量%とからなり、かつ
- (2) (イ) 成分が、アイソタクチックペンタッド分率95%以上、 特定条件での緩和時間でが0.01~0.35秒、特定条件での分子 量分布指数 (PDI) が1~18であり、さらに (3) (ロ) 成分の 極限粘度[η]が3.3dl/g以上、エチレン単位含有量が43重 量%以下である、プロピレン系樹脂60~90重量%と、(B)ゴム 状弾性体0~10重量%と、(C)タルク10~30重量%とを含有 するプロピレン系樹脂組成物、並びに、この樹脂組成物を射出成形し てなる自動車用内装部材を提供する。

THIS PAGE BLANK (USPTO)



P.B.5818 - Patentlaan 2 2280 HV Rijswijk (ZH) \$\simes\$ +31 70 340 2040 TX 31651 epo nl FAX +31 70 340 3016

Europäisches Patentamt

Zweigstelle in Den Haag Recherchenabteilung

European Patent Office

Branch at The Hague Search division

Office européen des brevets

Département à La Haye Division de la recherche

Gille Hrabal Struck Neidle Patentanwälte Brucknerstrasse 20 40593 Düsseldorf ALLEMAGNE	Gille Hrabal Struck Neidlein Prop Roos Eingang 1 1, März 2002	Datum/Date 11.03.02
	Vorfrist	<u> </u>
zeichen/Ref./Réf. T61 241 - mai		emande n°./Patent Nr./Patent No./Brevet n°. 34.4–1220–JP0001386
Anmelder/Applicant/Demandeur/Patentinhaber/Proprint IDEMITSU PETROCHEMICA	rietor/Titulaire L CO., LTD., et al	

COMMUNICATION

The European Patent Office herewith transmits as an enclosure the European search report for the above-mentioned European patent application.

If applicable, copies of the documents cited in the European search report are attached.

Additional set(s) of copies of the documents cited in the European search report is (are) enclosed as well

REFUND OF THE SEARCH FEE

If applicable under Article 10 Rules relating to fees, a separate communication from the Receiving Section on the refund of the search fee will be sent later.



THIS PAGE BLANK (USPTO)



SUPPLEMENTARY EUROPEAN SEARCH REPORT

Application Number EP 00 90 7934

· 15 12

	DOCUMENTS CONSID			
Category	Citation of document with i of relevant pas	ndication, where appropriate, sages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.CI.7)
X	;ISHII TOSHIYUKI (3 31 December 1997 (1 * the whole document document EP0908492	DP); NARA TOSHIHIDE (J)	1-3	C08L23/10 C08L23/16 C08K3/34 C08L53/02 //C08L23:10, C08L23:08
K	MEDICAL) 29 October * the whole document EP0916701 1, 2, 3, 12-14; particularly lines	S); EASTERN VIRGINIA 1998 (1998-10-29) nt ; and see family abstract ; claims 11,	1-3	
Ρ,Χ	PATENT ABSTRACTS OF vol. 1999, no. 08, 30 June 1999 (1999- & JP 11 071431 AV(1 LTD), 16 March 1999 * abstract *	-06-30) IDEMITSU PETROCHEM CO	1-3	TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.CI.7) CO8L CO8K
x	EP 0 636 650 A (MII 1 February 1995 (19 * claim 3 ; page 19 * claim 6 *	995-02-01)	1-3	CUOK
Y	PATENT ABSTRACTS OF vol. 1997, no. 07, 31 July 1997 (1997- & JP 09 071691 A'(I LTD), 18 March 1997 * abstract *	-07-31) DEMITSU PETROCHEM CO	1-3	
	The supplementary search reposet of claims valid and available	-/ ort has been based on the last at the start of the search.		
	Place of search	Date of completion of the search		Examiner
	THE HAGUE	1 March 2002	Hami	mond, A

CATEGORY OF CITED DOCUMENTS

X: particularly relevant if taken alone
 Y: particularly relevant if combined with another document of the same category
 A: technological background
 O: non-written disclosure
 P: intermediate document

1

ISR

T: theory or principle underlying the invention E: earlier patent document, but published on, or

& : member of the same patent family, corresponding document

after the filing date

D: document cited in the application
L: document cited for other reasons

THIS PAGE BLANK (USPTO)



SUPPLEMENTARY EUROPEAN SEARCH REPORT

Application Number EP 00 90 7934

	DOCUMENTS CONSID	ERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document with in of relevant pass	ndication, where appropriate, ages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.CI.7)
Y	EP 0 316 693 A (IDE 24 May 1989 (1989-0 * claims 1-8 *	MITSU PETROCHEMICAL CO) 5-24)	1-3	
A	EP 0 825 228 A (IDE 25 February 1998 (1 * abstract * page 9, line 28-4		1-3	
\	WO 94 06859 A (BETS CHEMICAL CO (US); F MURRAY) 31 March 19 * claims 1-14 */	ISKE THOMAS Ř (US);	1-3	
\	US 5 574 087 A (KOB 12 November 1996 (1 * the whole documen		1-3	
				TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.Ci.7)
l				
İ				
ĺ				
•				
		·		
	The supplementary search repor set of claims valid and available	t has been based on the last at the start of the search.		
<u>-</u>	Place of search	Date of completion of the search		Examiner
	THE HAGUE	1 March 2002	Hami	mond, A
CA	ATEGORY OF CITED DOCUMENTS	T : theory or principle E : earlier patent doc		
Y : partidocu	cularly relevant if taken alone cularly relevant if combined with anoth ment of the same category	after the filing date	e the application	oneo VII, VI
O: non-	nological background -written disclosure mediate document	& : member of the sa document		

ISR

1

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above–mentioned European search report. The members are as contained in the European Patent Office EDP file on The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

01-03-2002

	Patent docume cited in search re		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WC	9749765	A	31-12-1997	JP	10007851 A	13-01-1998
				ĒΡ	0908492 A1	14-04-1999
				WO	9749765 A1	31-12-1997
				ÜS	6034165 A	07-03-2000
<u> </u>	9847858	A	29-10-1998	 US	6020272 A	01 00 200
•••	7047030	^	29-10-1990	AU	6020373 A 7158298 A	01-02-2000
				WO	9847858 A1	13-11-1998
					904/030 A1	29-10-1998
JP	11071431	Α	16-03-1999	CN	1176259 A	18-03-1998
			•	EP	0825228 A2	25-02-1998
				TW	440583 B	16-06-2001
				US	5985973 A	16-11-1999
ΕP	0636650	Α	01-02-1995	CA	2128920 A1	29-01-1995
	•			CN	1269380 A	11-10-2000
				CN	1269381 A	11-10-2000
				CN	1105680 A ,B	26-07-1995
				DE	69401548 D1	06-03-1997
				DE	69401548 T2	05-06-1997
				EP	0636650 A1	01-02-1995
				JP	7090143 A	04-04-1995
				KR	149062 B1	15-10-1998
				US	5412020 A	02-05-1995
				KR	149151 B1	15-10-1998
				KR 	149150 B1	15-10-1998
JP	09071691	A	18-03-1997	NONE		
ΕP	0316693	Α	24-05-1989	JP	1126354 A	18-05-1989
				JP	1956061 C	28-07-1995
				JP	6039553 B	25-05-1994
				DE	3852988 D1	23-03-1995
				DE	3852988 T2	14-06-1995
				EP	0316693 A2	24-05-1989
				US	4948841 A	14-08-1990
ΕP	0825228	Α	25-02-1998	CN	1176259 A	18-03-1998
				EP	0825228 A2	25-02-1998
				JP	11071431 A	16-03-1999
	•			TW	440583 B	16-06-2001
				US	5985973 A	16-11-1999
WO	9406859	Α	31-03-1994	CA	2142733 A1	31-03-1994
			,	DE	69322871 D1	11-02-1999
				DE	69322871 T2	12-05-1999
—— nore	details about this a	nnex : see	Official Journal of the F	uropean Pr	69322871 D1 69322871 T2 atent Office, No. 12/82	

ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.

EP 00 90 7934

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report. The members are as contained in the European Patent Office EDP file on The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

01-03-2002

Patent document cited in search report		Publication date			Publication date	
WO 9406859	Α	<u> </u>	EP	0660859	A1	05-07-1995
WO 3400003	• • •		EP	0877050	A2	11-11-1998
			ES	2126002	T3	16-03-1999
			FΙ	951192	Α	14-03-1995
			JР	8501343	T	13-02-1996
			WO	9406859	A1	31-03-1994
			US	5576374		19-11-1996
			US	5681897	_	28-10-1997
			US	5688866	Α	18-11-1997
			US	5925703		20-07-1999
			ÜS	5856406		05-01-1999
US 5574087	A	12-11-1996	JP	7314490	Α.	05-12-1995

For more details about this annex : see Official Journal of the European Patent Office, No. 12/82

FORM P0459



☑ EPA/EPO/OEB

D-80298 München

TX 523 656 epmu d FAX +49 89 2399-4465 Europäisches Patentamt European Patent Office

Office européen des brevets

Generaldirektion 2

Directorate General 2

Direction Générale 2

Gille Hrabal Struck Neidlein Prop Roos

Patentanwälte Brucknerstrasse 20 40593 Düsseldorf ALLEMAGNE



Primary Examiner +31 70 340-4253 (substantive examination)

Formalities Officer / Assistant +31 70 340-2873 (Formalities and other matters)



Application No. 00 907 934.4-1220

Ref. T61 241 - mai

Date 22.04.2003

Applicant

IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD. et al.

Communication pursuant to Article 96(2) EPC

The examination of the above-identified application has revealed that it does not meet the requirements of the European Patent Convention for the reasons enclosed herewith. If the deficiencies indicated are not rectified the application may be refused pursuant to Article 97(1) EPC.

You are invited to file your observations and insofar as the deficiencies are such as to be rectifiable, to correct the indicated deficiencies within a period

of 4 months

from the notification of this communication, this period being computed in accordance with Rules 78(2) and 83(2) and (4) EPC.

One set of amendments to the description, claims and drawings is to be filed within the said period on separate sheets (Rule 36(1) EPC).

Failure to comply with this invitation in due time will result in the application being deemed to be withdrawn (Article 96(3) EPC).



HAMMOND A B Primary Examiner for the Examining Division

Enclosure(s): 2 page/s reasons (Form 2906)



Bescheid/Protokoll (Anlage)

Communication/Minutes (Annex)

Notification/Procès-verbal (Annexe)

Datum Date Date

22.04.2003

Blatt Sheet Feuille

1

Anmelde-Nr.:

Application No.: 00 907 934.4 Demande n°:

The examination is being carried out on the following application documents:

Text for the Contracting States:

DE FR GB

Description, pages:

1-16

as originally filed

Claims, No.:

1-3

as originally filed

1. The following documents D1-D2 are referred to in this communication; the numbering will be adhered to in the rest of the procedure:

D1 WO9749765 (family document EP0908492 is presumed to be a good translation)

D2 WO9847959 (family document EP0916701 is presumed to be a good translation)

Article 54

- 2. The present application does not meet the requirements of Articles 52(1) EPC because the subject-matter of claims 1-3 is not novel in the sense of Article 54(1) and (2) EPC.
- (a) The features of claim 1, that is a propylene-based resin composition comprising (A) 60 to 90% by weight of a propylene-based resin, (1) comprising 78 to 88% by weight of 23 C paraxylene insolubles (a) and 12 to 22% by weight of 23 C paraxylene insolubles (b), (2) the insolubles (a) having an isotactic pentad fraction of 95% or higher, a relaxation time (t) of 0.01 to 0.35 second at an angular frequency (w) of 10 degree/second when measured by melt viscoelastometry and a molecular weight distribution index of 1 to 18 which is expressed by (w2)/10(w1) wherein (w1) is an angular frequency at which a storage modulus (G') as measured by melt viscoelastometry is 2 x (10 to the power 2) Pa and (w2) is an angular frequency at



Bescheid/Protokoll (Anlage)

Communication/Minutes (Annex)

Notification/Procès-verbal (Annexe)

Datum Date Date

22.04.2003

Blatt Sheet Feuille

2

Anmelde-Nr.:
Application No.: 00 907 934.4
Demande no:

which a storage modulus (G') as measured by melt viscoelastometry is 2 x (10 to the power 4) Pa, and (3) the solubles (b) having an intrinsic viscosity in decalin of 3.3 dl/g or higher and an ethylene unit content of 43% by weight or smaller; (B) 0 to 10% by weight of a rubber-like elastomer; (C) 10 to 30% by weight of talc, are disclosed in D1 (EP0908492: abstract; claims 1-5; page 3, line 4 - page 6, line 29); D2 (EP0916701: abstract; claims 11, 1, 2, 3, 12-14; page 6, line 49-50; page 5, line 9 - page 8, line 47; page 21, line 26-33).

- (b) The features of claim 2, that is a propylene-based resin composition according to claim 1, wherein the solubles (b) have an ethylene unit content of 33 to 39% by weight, are disclosed in D2 (EP0916701 references as 2(a), particularly page 6, line 49-50).
- (c) The features of claim 3, that is an automotive interior trim produced by injection-molding the said propylene-based resin composition of claims 1 or 2, are disclosed in D1 (EP0908492 references as 2(a), particularly claim 5; page 2, line 5-9); D2 (EP0916701 references as 2(a), particularly page 21, line 26-33).
- 3. To meet the requirements of Rule 27(1)(b) EPC, the documents D1-D2 should be identified in the description and the relevant background art disclosed therein should be briefly discussed.
- 4. In order to facilitate the examination of the conformity of the amended application with the requirements of Article 123(2) EPC, the applicant is requested to clearly identify the amendments carried out, irrespective of whether they concern amendments by addition, replacement or deletion, and to indicate the passages of the application as filed on which these amendments are based.

If the applicant regards it as appropriate these indications could be submitted in handwritten form on a copy of the relevant parts of the application as filed.

17

ΕP



国際調査報告

PCT

(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 FI-300	今後の手続きについては、		の送付通知様式 参照すること。	C(PCT/ISA/220)
国際出願番号 PCT/JP00/01386	国際出願日 (日.月.年) 08.03		優先日 (日.月.年)	10.03.99
出願人(氏名又は名称) 出光石油化学株式会社	,			
	·		·	
国際調査機関が作成したこの国際調金の写しは国際事務局にも送付された。		(PCT18条))の規定に従い	・出願人に送付する。
この国際調査報告は、全部で 4	ページである。			•
この調査報告に引用された先行	支術文献の写しも添付されて 	でいる。		•
1. 国際調査報告の基礎 a. 言語は、下記に示す場合を除・ この国際調査機関に提出さ				デった。
b. この国際出願は、ヌクレオチ □ この国際出願に含まれる書		でおり、次の配	列表に基づき国	1際調査を行った。
□ この国際出願と共に提出さ	れたフレキシブルディスク	による配列表		•
□出願後に、この国際調査機	関に提出された書面による	配列表	•	
□ 出願後に、この国際調査機	関に提出されたフレキシブ	ルディスクによ	る配列表	•
□ 出願後に提出した書面によ 書の提出があった。	る配列表が出願時における	国際出願の開示	の範囲を超え	る事項を含まない旨の陳述
書面による配列表に記載し 書の提出があった。	た配列とフレキシブルディ	スクによる配列	表に記録した	配列が同一である旨の陳述
2. 請求の範囲の一部の調査な	ぶできない(第I欄参照)。			•
3. 第明の単一性が欠如してい	、る(第Ⅱ欄参照)。	·		
4. 発明の名称は 🗓 出	頁人が提出したものを承認す	^ト る。		
□ 次6	こ示すように国際調査機関が	「作成した。	•	
5. 要約は	重人が提出したものを承認す			· ·
国国	I欄に示されているように、 受調査機関が作成した。出願 国際調査機関に意見を提出す	重人は、この国	祭調査報告の発	則38.2(b)) の規定により 送の日から1カ月以内にこ
6. 要約書とともに公表される図は、 第 図とする。	頂人が示したとおりである。		区 な	L
	重人は図を示さなかった。			·
□ 本図	図は発明の特徴を一層よく表	ましている。		



てなる自動車用内装部材を提供する。

第Ⅲ欄 要約 (第1ページの5の続き)

- (1) (イ) 23℃パラキシレン不溶分78~88重量%と、
- 23℃パラキシレン可溶分12~22重量%とからなり、かつ
- (イ)成分が、アイソタクチックペンタッド分率95%以上、 特定条件での緩和時間でが0.01~0.35秒、特定条件での分子 量分布指数 (PDI) が1~18であり、さらに (3) (ロ) 成分の 極限粘度 [η]が3.3 d l / g 以上、エチレン単位含有量が43重 量%以下である、プロピレン系樹脂60~90重量%と、(B)ゴム 状弾性体0~10重量%と、(С)タルク10~30重量%とを含有 するプロピレン系樹脂組成物、並びに、この樹脂組成物を射出成形し



•	※四本度 キャハ 前本八柄	/FEIDMANNER / NAS	(T D C)	`
Α.	発明の属する分野の分類	(国际符計分類)	(IPC)	,

Int. C1', C08L 23/10, C08L 23/16, C08K 3/34// (C08L 23/10, C08L 23:08)

調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. C1', C08L 23/00-23/36

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Х	JP, 9-71691, A (出光石油化学株式会社) 18.3月.1997 (18.03.97) 特許請求の範囲、0 001,0030段落 (ファミリーなし)	1-3
PX	JP, 11-71431, A (出光石油化学株式会社) 16.3月.1999 (16.03.99) 特許請求の範囲、0 001段落 (ファミリーなし)	1 – 3

X C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

- * 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「〇」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって て出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理 論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08.05.00

国際調査報告の発送日

1 6.05.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

小出 直也

4 J | 9640

電話番号 03-3581-1101

竹線 3493



	国际侧直积日	
C (続き). 引用文献の	関連すると認められる文献	関連する
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 JP, 10-45971, A (東ソー株式会社)	請求の範囲の番号 1 - 3
A	17.10-45971, A (泉ケー株式芸社) 17.2月.1998 (17.02.98) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1 - 3
A	US, 5574087, A (Idemitsu Petrochemical Co.,Ltd) 12.11月.1996 (12.11.96) 特許請求の範囲 &JP, 7-314490, A	1-3
A	WO, 97/49765, A (出光石油化学株式会社) 31. 12月. 1997 (31. 12. 97) 特許請求の範囲 &JP, 10-7851, A&EP, 908492, A1&U S, 6034165, A	1 - 3
		·
		·
-		
,		
. '		-
		25 3
		·
		,
		·



From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION CONCERNING SUBMISSION OR TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To

OHTANI, Tamotsu Tomoe-cho Annex-II, 4F 8-27, Toranomon 3-chome Minato-ku Tokyo 105-0001 JAPON

Date of mailing (day/month/year) 18 May 2000 (18.05.00)	
Applicant's or agent's file reference FI-300	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP00/01386	International filing date (day/month/year) 03 March 2000 (03.03.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 10 March 1999 (10.03.99)

IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD. et al

- 1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- 2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- 3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- 4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Priority date
Priority application No.
Country or regional Office of priority document

10 Marc 1999 (10.03.99)
11/63398
Country or regional Office of priority document

28 Apri 2000 (28.04.00)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Marc Salzman

0

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Telephone No. (41-22) 338.83.38

)



PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

OHTANI, Tamotsu Tomoe-cho Annex-II, 4F 8-27, Toranomon 3-chome Minato-ku Tokyo 105-0001 **JAPON**

Date of mailing (day/month/year)

14 September 2000 (14.09.00)

Applicant's or agent's file reference

FI-300

IMPORTANT NOTICE

International application No. PCT/JP00/01386

International filing date (day/month/year) 08 March 2000 (08.03.00)

Priority date (day/month/year)

10 March 1999 (10.03.99)

Applicant

IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD. et al

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

BR,CN,EP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 14 September 2000 (14.09.00) under No. WO 00/53673

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

J. Zahra

Telephone No. (41-22) 338.83.38

Facsimile No. (41-22) 740.14.35